

11.09.03

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日 2 0 0 3 年 3 月 1 9 日
Date of Application:

出 願 番 号 特 願 2 0 0 3 - 1 1 7 6 1 2
Application Number:
[ST. 10/C] : [J P 2 0 0 3 - 1 1 7 6 1 2]

出 願 人 島 宗 孝 之
Applicant(s): 吉 川 公

REC'D 30 OCT 2003

WIPO PCT

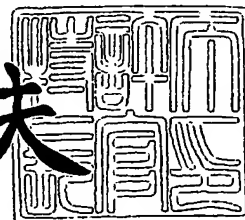
CERTIFIED COPY OF
PRIORITY DOCUMENTPRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

BEST AVAILABLE COPY

2 0 0 3 年 1 0 月 2 0 日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今 井 康 夫



【書類名】 特許願
【整理番号】 SY-02013
【提出日】 平成15年 3月19日
【あて先】 特許庁長官 殿
【国際特許分類】 C01B 33/033
【発明者】

【住所又は居所】 東京都町田市森野 4 丁目 1 5 番 1 4 号

【氏名】 島宗 孝之

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県茅ヶ崎市共恵 2 丁目 6 番 2 3 号

【氏名】 吉川 公

【発明者】

【住所又は居所】 東京都世田谷区等々力 8-20-21-104

【氏名】 石澤 伸夫

【特許出願人】

【識別番号】 399027783

【住所又は居所】 東京都町田市森野 4 丁目 1 5 番 1 4 号

【氏名又は名称】 島宗 孝之

【電話番号】 042-722-3476

【特許出願人】

【識別番号】 596028365

【住所又は居所】 神奈川県茅ヶ崎市共恵 2 丁目 6 番 2 3 号

【氏名又は名称】 吉川 公

【電話番号】 0467-87-3381

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【書類名】 明細書**【発明の名称】 シリコンの製造装置及び製造方法****【特許請求の範囲】**

【請求項 1】 四塩化珪素と亜鉛を気相で反応させて固体ないし液体のシリコンと気体塩化亜鉛を得るシリコン製造用反応炉において、反応炉部とその下方にあるシリコン貯留部からなり反応炉に反応ガスの入り口と反応で生成した塩化亜鉛ガスの出口を有し、更に反応炉内に反応により生成した固体ないし液体シリコンを捕集する加熱機構を有する耐熱・導電性のトラップを有し、反応ガスの供給中或いは供給停止後に該トラップをシリコンの熔融温度以上に加熱して生成したシリコンを液状として後シリコン貯留部に送るようにしたことを特徴とするシリコン製造装置。

【請求項 2】 反応炉部の下方にシリコン貯留部があり、反応炉部で溶解したシリコンは重力により貯留部に送られるようにしたことを特徴とする請求項 1 のシリコン製造装置

【請求項 3】 反応炉部の加熱温度が 910℃から 1500℃であり、その間の任意の温度に保持出来る温度制御機構を有することを特徴とする請求項 1 のシリコン製造装置。

【請求項 4】 反応炉の内壁が石英ガラスを主とすることを特徴とする請求項 1 のシリコン製造装置。

【請求項 5】 反応炉の内壁がタンタルであり、トラップ加熱時、内壁タンタルも同時に加熱するようにしたことを特徴とする請求項 1 のシリコン製造装置。

【請求項 6】 反応炉が旋回炉であり、トラップが反応炉内壁内側に配置された網状体であることを特徴とする請求項 1 のシリコン製造装置。

【請求項 7】 反応炉内に多孔性及び／又は網状体の金属が充填されてなることを特徴とする請求項 1 のシリコン製造装置。

【請求項 8】 トラップが反応炉に入れられた金属フィルター用多孔体焼結体であることを特徴とする請求項 1 のシリコン製造装置。

【請求項 9】 耐熱・導電性のトラップがタンタル及び／又はモリブデンである請求項 1、5、6、7 及び 8 のシリコン製造装置。

【請求項 10】耐熱・導電性のトラップの加熱を誘導加熱により行うことを特徴とする請求項 1、5、6、7 及び 8 のシリコン製造装置。

【請求項 11】耐熱・導電性のトラップの加熱をトラップへの直接通電により行うことを特徴とする請求項 1、5、6、7 及び 8 のシリコン製造装置。

【請求項 12】四塩化珪素と亜鉛を気相で反応させて固体ないし液体のシリコンと気体塩化亜鉛を得るシリコンの製造において、該反応を行う反応炉内に反応で生成した固体ないし液体シリコンを捕集する耐熱・導電性のトラップを設置し、反応ガスの供給中或いは供給停止後該トラップをシリコンの溶融温度以上に加熱して該生成シリコンを液状として収集回収するようにしたことを特徴とするシリコンの製造方法。

【請求項 13】反応温度が 910℃から 1500℃であることを特徴とする請求項 12 のシリコンの製造方法。

【請求項 14】雰囲気ガスが塩化亜鉛であることを特徴とする請求項 12 のシリコンの製造方法。

【請求項 15】亜鉛ガスの供給を四塩化珪素に対する化学量論量よりわずかに過剰とすることを特徴とする請求項 12 のシリコンの製造方法。

【請求項 16】トラップの加熱温度を 1410 から 1500℃とすることを特徴とする請求項 12 のシリコンの製造方法。

【請求項 17】貯留部内で生成シリコンを 1410℃以下で保持することを特徴とする請求項 12 のシリコンの製造方法。

【請求項 18】貯留部からのシリコンの排出の前に貯留シリコンを加熱融体とし、脱ガスを行ってから、外部に取り出すことを特徴とする請求項 12 のシリコンの製造方法。

【請求項 19】反応により生成した塩化亜鉛は系外に取り出して、電解により塩素と亜鉛ガスとに分解し塩素は四塩化珪素生成に、亜鉛は反応ガスとして反応炉部に戻し再循環することを特徴とする請求項 12 のシリコンの製造方法。

【請求項 20】供給ガスを予熱してから反応炉へ供給することを特徴とする請求項 12 のシリコンの製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、主として太陽電池や電子デバイス用として使用する高純度シリコン製造方法に関し、原料から連続的に太陽電池や、電子デバイスに使用する高純度のシリコン単結晶、シリコン多結晶、溶解用に使用する高純度シリコンを安価で高効率に製造する技術である。

【0002】

【従来の技術】

従来、太陽電池用シリコンは、半導体用シリコンの不適格品を使用することが多かったがそのような場合には、今後の太陽電池の飛躍的な需要に応えられるだけの供給が伴わないという問題が残されている。また太陽電池用シリコンは単結晶を使用した方が発電効率が高くなるのでその方が望ましいが、極めて高価であり特殊目的以外には使えないのが現状である。一方太陽電池用のシリコンは単結晶であっても、電子デバイスに要求される最高純度、つまり11-ナイン級の高純度を必要とするわけでは無く、7から9ナイン級で良いとされ、またこの程度であれば電子デバイスの一部でも使用が可能であるとされる。また一部のシリコン需要は高純度品ではあるが、半導性を与えるために他の金属をドーブしたものが電子デバイスの一部として使用されるように成っている。この様にその需要が急増されるとするシリコンではあるがその製造は必ずしも高効率とはいかず、又シーメンス法に代表されるようにエネルギー消費の多いものであった。

【0003】

つまり、古くからシリコン結晶を製造する方法として、熔融亜鉛とガス状四塩化珪素を反応させるいわゆる金属熔融法が知られている。その場合は製品シリコンが微細な粉状となり、後処理の煩雑さや不純物処理の難しさ並びにキャスティングの困難さの為、高コストとなり、実用化されるに至っていない。このために気相亜鉛還元法によるシリコン製造が提案されているが、シリコンとともに重量比で約10倍の塩化亜鉛が副生し、その処理が問題となりやすく実用化の例はほとんどない。最近では特開平11-92130に記載のように、熔融亜鉛表面に四塩化珪素を吹き付けることによってシリコンを得、さらに生成する塩化亜鉛を電気分解して亜鉛金属を取り出すと共に、生成する塩素を塩化水素として四塩化

珪素製造に使う方法が提案されている。塩化亜鉛の再利用という点では目的を達成しているが、生成シリコンは溶融亜鉛との混合体であるためにシリコンそれ自体が微細な粒子となってしまうこと、従って生成シリコン粒子の表面積が大きくなりそのために高純度化が困難になると言う問題点があった。またモノシランやジシラン、トリクロロシランを原料とする方法があるがこれらについてはその反応収率が低く従ってエネルギー消費が大きくなるという問題と共に、併存する水素の回収があわせて問題となっているが、水素に限らず、副生する塩素乃至塩酸の取り扱いにも問題がある。一方これらによって得た多結晶あるいは粉末状のシリコンから単結晶シリコンを得るためには、粒の大きさが大きく相対的に表面積の小さなシリコン多結晶の場合は、粒子表面への不純物の吸着、特に酸素の吸着が少ないので、問題は少ないが、粉末状の表面積の大きな粒子の場合は、バルク部分が高純度であっても、表面吸着物質が不純物要因となるために、結晶製造装置への投入前に、表面の吸着物除去を行う必要があり、作業が煩雑になると共に、廃棄物処理などの必要性も合わせて生じており、それ故どうしても製造コストがかさむという結果となっている。しかも常法によるとまずシリコン粉体、あるいは微結晶を製造するために高温処理を行い、それを冷却し、更に結晶成長のために昇温溶融と煩雑な操作を必要とすると共に、加熱／冷却を繰り返すようになっており、エネルギー消費上からも問題であった。特にこれらにより、工程ごとに独立しているから、作業性が良いとはいうものの、熱の出入りを含むこれらの作業は高付加価値の電子デバイス用としてはまだ許容限度であるかも知れないが、今後の主用途と考えられる太陽電池では、多量に使う代わりに、その価格が安価であり、しかも製造時のエネルギー消費の少ないことが重要な達成課題であるが、ここにまで言及した技術は今までに知られていない。

【0 0 0 4】

【従来技術の問題点】

上記に示したように従来技術はいずれもシリコンを固体としてあるいは結晶として生成させることに主眼点が置かれており、生成した結晶塊、あるいは粉体が空気に中にさらされることを前提としており、単結晶、あるいは結晶の発達した多結晶を製造する場合には一度取り出したものを必要に応じて再精製してから再び

溶解、結晶化という作業を行っており、少なくとも再溶解のための余分なエネルギーが必要であるという問題点があった。またあらかじめシリコンの塊あるいは粉体を作る時に、空気中のさらされることを前提としているために、不純物吸着を最小とするためにシリコン原料の製造に当たっては、出来るだけ塊状のシリコンの製造が可能な条件が所用される結果、理屈の上で最も容易であり、単純化できる、四塩化珪素の亜鉛による還元方法が商業生産では事実上使えないという問題点を残していた。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】

本発明は、如上の問題点を解決するためになされたものであり、容易な方法によって、シリコンの生産を行い、空気中への中間的な取り出しなしに必要な液状または塊状体を製造する製造装置並びにその製造方法を提供することを課題とした。

【0006】

【発明の手段】

本発明は、第一に、四塩化珪素と亜鉛を気相で反応させて固体ないし液体のシリコンと気体塩化亜鉛を得るシリコン製造用反応炉において、反応炉部とその下方にあるシリコン貯留部からなり反応炉に反応ガスの入り口と反応で生成した塩化亜鉛ガスの出口を有し、更に反応炉内に反応により生成した固体ないし液体シリコンを捕集する加熱機構を有する耐熱導電性のトラップを有し、反応中或いは反応停止後に該トラップをシリコンの熔融温度以上に加熱して生成したシリコンを液状とし、シリコン貯留部に送るようにしたことを特徴とするシリコン製造装置であり、第二に該製造装置を使用したシリコンの製造方法であって、四塩化珪素と亜鉛を気相で反応させて固体ないし液体のシリコンと気体塩化亜鉛を得るシリコンの製造において、該反応を行う反応槽内に反応で生成した固体ないし気体シリコンを捕集する耐熱導電性のトラップを設置し、反応中或いは反応停止後該トラップをシリコンの熔融温度以上に加熱して該生成シリコンを液状として収集回収するようにしたことを特徴とするもので、これにより半連続的に四塩化珪素を原料として高純度のシリコン塊または液状のシリコンを得ることが出来る。

【0007】

以下詳細に説明する。

本発明におけるシリコンの製造装置は塩化亜鉛雰囲気ガス中で四塩化珪素と亜鉛からなるガスを会合させ、塩化亜鉛ガスと固体あるいは半融体状のシリコンを得ること、生成シリコンは固体として反応炉内部にあるトラップ上に析出して反応ガス並びに雰囲気ガスから分離されること、また反応生成時には非常に微細な粒子または融体である生成物シリコンを系外に出ないように設けられた実質的にフィルターの役目をするトラップにとらえられる様にして、反応炉部内に堆積させる様になっている。更に、これにより一定量の反応が完了すると共に反応ガスを排気してしまい、その状態でフィルター部分を含むトラップをシリコンの融点である1410℃以上に加熱し、内部に生成堆積したシリコンを融体として反応炉部の下部に設けたシリコンの貯留部に落下、貯留する。このようにして貯留部内では塊状体として貯留されるが、それを定時的にそれを取り出し、あるいは加熱し融体として含有ガスを脱ガス化して融体のまま、あるいは再び塊状化して取り出す様にして、従来、得にくいとされた、四塩化珪素を原料とした液状のあるいは塊状の高純度シリコンを得ることが出来るようになった。つまり、従来法による四塩化珪素からのシリコン生成では、生成シリコンが微細な粒子であるが故に空気中に取り出すことに生成シリコン表面が酸化してしまいあるいは窒化してしまうことによって、その後の溶解作業などが困難となること、また表面への不純物吸着によって不純物レベルが上がってしまうことを見いだし、シリコンを塊状体、あるいは融体とするまで、外気に曝させないことにより目的が達成できることを見い出して本発明に至ったものである。本発明のシリコン製造装置は大別して、反応炉部と反応炉で生成したシリコンを保持する貯留部からなる。反応炉は炉本体と炉内に設けられた、耐熱性で導電性で、しかも高温においてもシリコンと実質的に反応しないタンタルあるいはモリブデン、またはそれらの合金からなる生成シリコンのトラップ並びに反応ガスの導入、排出口及び生成シリコン排出のドレーンからなる。またこれに加えて反応温度保持のための加熱機構、並びに生成シリコンを融体化し取り出すためのトラップ加熱機構が含まれる。またシリコンの貯留部は融体シリコンの受け口と塊状シリコンの取り出し口、及び／又は

液状シリコンの取り出し口、融体シリコンの取り出し口、必要に応じたシリコン融体の脱ガス用のアルゴンガス送気ノズル、並びに加温設備からなる。

【0008】

反応炉部は縦型が望ましく、融体シリコンが重力により貯留部に落ちるように貯留部の上に位置するように設置されることが望ましい。反応炉部は上記に示したように加熱機構を有する。反応温度はシリコンの融点である 1410°C 以下、また気相反応を行わせるために、四塩化珪素、塩化亜鉛、亜鉛が共に気相である、亜鉛の沸点以上である 907°C 以上とする必要があり、そのための加温が出来るようになっている。また炉壁部には生成シリコンが積層され、貯留部への移送に当たっては壁部の温度がシリコンの融点以上に上げられることが合わせて必要となる。またトラップ部分は析出したシリコンを完全に融解する必要上、少なくともシリコンの融点以上の温度が必要であり望ましくは融点より 100°C 程度高い温度での操作により、粘度の低いシリコン融体としてシリコン貯留部に送れるようにするためにトラップの加温は 1500°C 程度まで出来ることが必要である。このためにはトラップ自身を発熱させた方が望ましく、トラップ自身に通電して発熱させること、あるいはトラップが三次元形状であれば誘導加熱方式による発熱が望ましい。それにより、炉体部分の温度をそれほど上げずにシリコンのみを融体化できるので、不純物の混入の可能性を大幅に減らすことが出来、高純度シリコンとして取り出すことが出来る。このためにトラップの材料としてはシリコンとその融点以上でも実質的に反応しない、しかも融点が極めて高く、安定で、しかも導電性を有する、タンタル又はモリブデン、或いはこれらを主とする合金であることが望ましい。また炉壁材としてこのようであるが、少なくとも反応温度においてシリコンあるいは反応ガスとの反応がないこと、が望ましく、炉壁材としては上記タンタルやモリブデンの他に、たとえ部分的に反応を起こし手も不純物とならないシリカガラス（石英ガラス）が望ましい。この反応炉には原料である四塩化珪素と亜鉛ガスの導入孔を有し、反応ガスである塩化亜鉛ガスのガス抜きあるいは塩化亜鉛ガスの循環用のガス出口とガスの入り口が設けられている。なお塩化亜鉛ガスは反応原料ガスである四塩化珪素及び亜鉛ガスの希釈ガスとしてガス入り口の代わりにこれらのガス供給口を使うこともできる。反応炉部内

に設けるトラップ材の材質は上述の通りであり、タンタル、タンタルを主体とする合金あるいはモリブデン、モリブデンを主体とする合金であり、その形状は特には指定されないが、最小限の必要性としては取り出される塩化亜鉛と共に生成シリコンが外部に抜けるのを防ぐための実質的にフィルターとして働く多孔材がある。それ以外で特に指定されないが、反応部分をおり囲むように置かれたエクスパンドメッシュ、編みメッシュなどのメッシュ材やフォーム、あるいは細いワイヤーを組み合わせたウェブなどを使う。これらを反応炉内の反応部分を覆い囲むように設置し反応により生成したシリコン粒子や微粒による融点降下により液状で出てきたシリコンがこれらのメッシュあるいはウェブやフォームなどのトラップ材に表面に付着する。タンタルやモリブデンはシリコンとは反応しないこと、またたとえ反応する要素があっても基本的には固体—固体の接着であるので反応することなく、不純物の要因とはならない。このとき同時に炉壁に付着するが炉壁を安定なシリカガラスや、上記タンタル、モリブデンあるいはこれらの合金で作っておけば反応を起こさないので安定である。

【0009】

なお高温反応とはいえ四塩化珪素の分解温度までは至っていないので全く問題はないが、何らかの原因で自己分解を起こす場合を考慮して亜鉛をごくわずか、常に1から5%程度過剰となるように亜鉛を入れるようにしておけばたとえ自己分解を起こしても他に影響することない。

【0010】

このようにして析出させたシリコンはトラップ自身をシリコンの融点以上に上昇することで即座にシリコンは融体として下方に流れ、下方に有するシリコンの貯留部に流れ込み保持される。なお炉壁もこのとき短時間温度を融点以上に上昇すればほとんどシリコンとの反応が起こることなくシリコンは貯留部に送られる。なおトラップ材の加熱はトラップ材がメッシュや多孔板であればそれに直接通電する事によって行えるし、ウェブやフォームなどであれば直接通電が困難となる場合があるので、その時は、反応炉部の外部に電源を設けて、誘導加熱方式で金属部を加熱してシリコンを融体化し、貯留部に送ることが可能となる。なお炉壁に付着しているシリコンは誘導加熱方式の場合は自身発熱して融体となるが、そ

うでない場合は、シリカガラス炉壁を使用する場合は、外部加熱による融体化が必要である。なおこのときに短時間ではあるがシリカガラスとシリコンの反応が起こる可能性があり、 SiO の生成の可能性はあるが、短時間であり、ガス状で排出されるためスペック上ほとんど問題にならないこと、また汚染されても SiO であって、これは結晶成長で除かれるので問題はない。

【0011】

貯留部は、シリコンと原則反応しない材料で出来ていることが必要である。また製品シリコンの処理のためにやはり処理炉として使えることが必要であり、そのための加熱機構が必要である。つまり、シリコンの融点以上で安定に運転できることが必要であり、 1500°C 程度で使えることが望ましい。シリコン貯留部分の材質は特には指定されないが、 1500°C 程度の温度でもシリコンと反応しないタンタル、モリブデン、タンタルを主とする合金、モリブデンを主とする合金並びにたとえ反応しても不純物とならないシリカガラス（石英ガラス）であることが望ましい。また必要に応じてはシリコン中に含有されるガスを除くために貯留部内で融点以上の温度にあげて融解し、下部からアルゴンガスを流してガス成分を除くことが出来る。ガスノズルとしては上記金属の他にシリコンとの反応性の全くない、しかも高温での機械強度の極めて高い、イリジウムを使うことが出来る。

【0012】

尚このような脱ガス処理をしなくても含有ガス成分がほとんど無いこと、またこの後の多結晶化、あるいは引き上げによる単結晶化時に容易に除けることから問題は少ないので必要に応じてこのような処理を行えばよい。

以下実施例に依って説明するが、これに制限されないことは言うまでもない。

【0013】

【実施例】

「実施例1」図1に示す反応炉から成るシリコンの製造装置を組み立てた。又図2にはこの反応炉を含む製造装置の全体のプロセスを示した。図1に示すように、反応炉は石英ガラスを内張とした円筒状反応炉部①と下部のシリコン貯留部②から成る。反応炉部①は内側にタンタル線を編んで作った円筒鳥かご状のメッシ

ユ③が入っている。又反応炉部上方には雰囲気ガス、並びに生成ガスの抜き口④を設けており、その抜き口部分にはタンタルの細線を焼き固めたフィルター⑤を取り付けた。このフィルターと鳥かご状のメッシュからはリード線を出して通電し加熱出来るようにした。雰囲気ガスは石英硝子の円筒と円筒鳥かご状のメッシュ③の間を円筒面に沿うように流、上方の抜き口④から抜き、リサイクルするようにした。⑥が雰囲気ガスの供給口である。又反応ガスは円筒鳥かご状メッシュ③の内側にわずかに上方に向けて互いに交流的に流すようにした。⑦は反応ガスの供給口である。尚反応炉は外部に設けたヒーター⑧により加熱するようにして反応温度を保持するようにした。反応炉の下部に設けたシリコン貯留部は石英ガラス製のボートの内側をタンタル箔で覆ったものとし、外部にヒーター⑨を設けて加熱するようにした。

本反応炉は図 2 のプロセス中に取り付けられている。つまり雰囲気ガスである塩化亜鉛ガスはガス加熱装置▲ 1 1 ▼と反応炉▲ 1 0 ▼の間を循環しており、一部のガスは取り出されて電解槽▲ 1 2 ▼に送られ電解によって亜鉛と塩素ガスとに分解される。生成塩素ガスは反応槽／精製槽▲ 1 3 ▼でシリコンと反応、精製して塩化珪素として反応炉部▲ 1 0 ▼に供給する。又亜鉛も加熱機構▲ 1 4 ▼により加熱気化されて、反応炉▲ 1 0 ▼に供給され、反応に供される。これにより副原料である亜鉛並びに塩化亜鉛は系内を循環し、シリコンが高純度シリコンとして反応炉▲ 1 0 ▼の貯留部②に貯蔵される。この貯留部のシリコンは多結晶として取り出しても良いし、結晶成長装置▲ 1 5 ▼に送って単結晶インゴットとして取り出すこともできる。

この装置を用いて循環ガスである塩化亜鉛の温度を 1100°C 、圧力を 2 kg/cm^2 として 1100°C に保った反応炉部に送ると共に、塩化珪素と塩化亜鉛を $1:10$ に混合したガスと亜鉛と塩化亜鉛を $1:2$ に混合したガスを反応ガスとして反応炉部に送った。尚亜鉛の供給量は塩化珪素との反応必要量の 3% 増しとした。1 時間反応させた後に塩化亜鉛ガスをアルゴンガスで置換した後に、反応炉部のタンタルに通電して 1450°C まで昇温した。尚炉内温度は 1100 から 1400°C に保持した。又貯留部の温度も反応炉部と同じとした。これによりタンタルフィルター並びにタンタルメッシュ表面に形成されたシリコンが液滴とな

り、貯留部に塊状として析出した。このものの分析を行ったところ 7 ナイン以上の純度があり、タンタルは検出されなかった。

【0014】

「実施例 2」タンタル部をモリブデンとした以外実施例 1 と同じ装置を使用してシリコンの製造試験を行った。なおモリブデンのメッシュが得られなかったので、円筒鳥かご状のメッシュに代えて、開口率 45% の穴あき板を同様の形状としたものを用いた。これを用いて雰囲気ガスである塩化亜鉛の圧力を 1 気圧とし、炉内温度を 1050℃ として反応を行った。尚亜鉛の供給は実施例 1 と同様、理論量の 3% 増しとした。反応終了後アルゴンガスで脱気した後、モリブデンに通電し、モリブデンを融体として貯留部に移動させ固化した。これについて分析を行ったところ 7 ナイン以上であり十分に高純度であると共に、モリブデンはまったく検出されず、本発明では容易に高純度のシリコンの得られることがわかった。

【0015】

「実施例 3」全プロセスは実施例 1 に準じ、反応炉部を図 3 に示すような構造とした反応炉を使用した。つまり炉外形は実施例 1 と同じく石英ガラスとして、その外部に誘導加熱用の電源▲16▼を置いた。また炉内は円筒状のタンタル板▲17▼で覆った。又反応炉下部にはフィルターを兼ねて、三次元状の線径 0.1 から 0.2 mm のタンタルウエップ▲18▼を充填した。雰囲気ガスとして 1200℃ に加熱した塩化亜鉛ガスを流して炉内温度をほぼ 1200℃ に保持した。これに実施例 1 と同様にして四塩化珪素と亜鉛のガスを供給した。尚雰囲気ガスである塩化亜鉛ガスはタンタル円筒内を回転するように吹き込み、亜鉛並びに塩化珪素ガスがこの流れに乗りながら反応するようにした。15 分後に反応を止め、ガスを抜いた後誘導加熱装置の電源をいれてタンタル多孔板並びにウエップの温度 1500℃ まで加熱した。これによりタンタル表面のシリコンが融解し、下方に落ちていき、貯留部②に保持された。この様にして塊状で得られたシリコンの純度は 8 ナインであった。このシリコンについて単結晶引き上げを行えば 11 ナインのシリコン単結晶の得られることが予想された。

【0016】

「実施例 4」全プロセスは実施例 1 に準じ、反応炉部を図 4 に示すような構造とした反応炉を使用した。つまり実施例 3 に示した反応炉部中の金属部分をモリブデンに変え、内壁部の壁を設け、炉内に配置するウェップを炉内上部に設けると共に炉下部から雰囲気ガスである塩化亜鉛、並びに反応ガスである四塩化珪素、並びに亜鉛を下から入れ、上部に抜くようにした。また炉の直下にはシリコン貯留部を設けた。尚シリコン貯留部の内壁はタンタルとした。この炉を使って雰囲気ガス温度を 1300℃としてガスを送り込むと共に、反応ガスは実施例 1 に示すように、四塩化珪素、亜鉛とも塩化亜鉛ガスと混合して反応ロブに送り込んだ。これらのガスの温度は四塩化珪素含有ガス 1000℃、亜鉛含有ガス 1300℃であり、反応温度は実質的に 1300℃であった。これによってモリブデンのウェップ部にシリコンが析出していった。15 分後に反応ガスを止めて反応を修了させ、1300℃のアルゴンガスを送ってガス置換を行い残留ガスの排出を行った後ウェップならびに壁を誘導加熱により 1500℃まで上昇シリコンを融解させた。融解シリコンは下方シリコンの貯留槽に液状で充填された。尚貯留その温度は 1400℃であり、充填後しばらくしてから徐々に固化が始まった。2 時間冷却後生成シリコンを取り出したところ、塊状であり、非常にコンパクトであることがわかった。また分析の結果はタンタルもモリブデンも見られず 8 ナイン以上の純度であった。

【0017】

【発明の効果】

本発明により、従来針状の微細結晶しか得られないので高純度化が困難とされた四塩化珪素を原料としたシリコンの製造において高純度の塊状の結晶が得られることがわかった。またこれにより、消費エネルギーはシリコン→四塩化珪素の反応が極めて早く、また一方的であり、また四塩化珪素+亜鉛→シリコン+塩化亜鉛も気相反応ではシリコンのみが系外に出るので極めて早いしかも一方的な反応であるので、装置が極めて小型であり、しかも反応が早く製造能力が極めて高いという効果と共に、消費エネルギーが極めて小さく計算上はほぼ 1/10 で良いという多大なる省エネルギー効果のあることがわかった。更に反応温度をシリコンの融点より低くしたことによって、反応炉内壁とシリコンの反応の可能性が大

幅に減ったこと、またシリコンを炉内融解する時間を最小としたことに炉設備そのものの寿命が飛躍的に拡大できるように成り、長期連続運転にでも耐えられるようになったという工業的に大きな意味を持つ効果が得られた。

【図面の簡単な説明】

【図 1】 本発明の反応炉である。

【図 2】 本発明のシリコン製造装置プロセスフローである。

【図 3】 本発明の反応炉である。

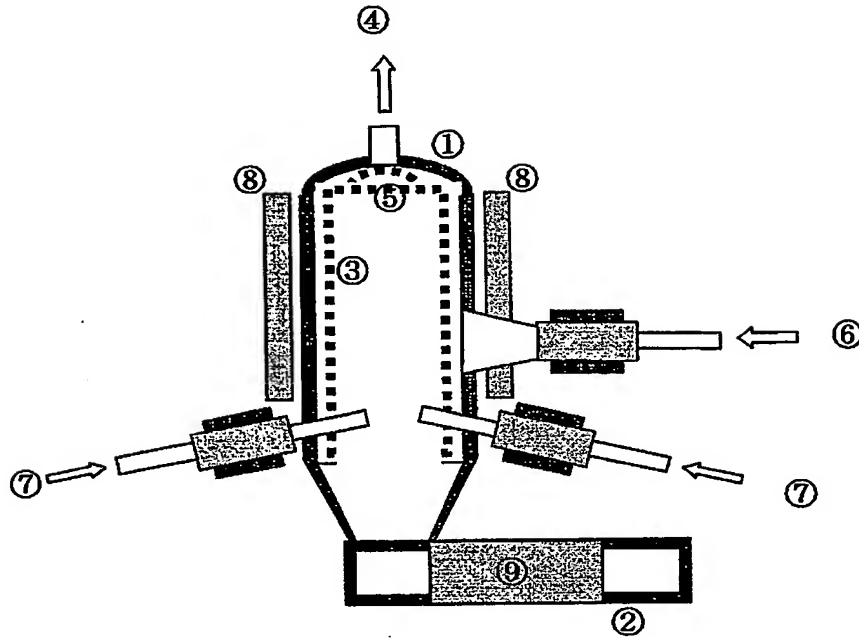
【図 4】 本発明の反応炉である。

【符号の説明】

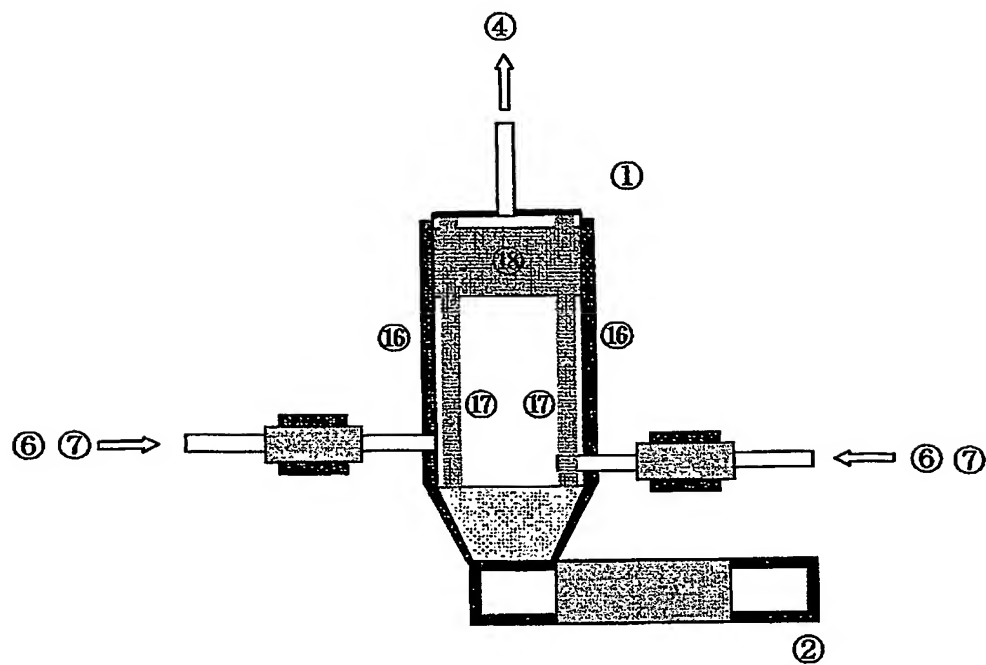
- ① 反応炉部
- ② 貯留部
- ③ 円筒鳥かご状メッシュ
- ④ 生成ガス抜き口
- ⑤ フィルター
- ⑥ 雰囲気ガス供給口
- ⑦ 反応ガス供給口
- ⑧ 反応炉部加熱ヒーター
- ⑨ 貯留部加熱ヒーター
- ▲10▼ 反応炉
- ▲11▼ 雰囲気ガス加熱装置
- ▲12▼ 電解槽
- ▲13▼ 塩素—シリコン反応、精製槽
- ▲14▼ 亜鉛加熱機構
- ▲15▼ 結晶成長装置
- ▲16▼ 誘導加熱電源
- ▲17▼ 円筒状金属板
- ▲18▼ 金属ウエブ

【書類名】 図面

【図 1】



【図 4】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 本発明は、シリコンの製造においてエネルギー勝敗が少ないにも関わらず、高純度化が困難であった四塩化珪素の塩化亜鉛還元法に関して、その問題点を解決し高純度を可能とする装置並びに方法として、シリコンの生産を容易な条件で行い、空気中への中間的な取り出しなしに必要な液状または塊状体を製造する製造装置並びにその製造方法を提供することを課題とした。

【解決手段】 装置として四塩化珪素と亜鉛を気相で反応させて固体ないし液体のシリコンと気体塩化亜鉛を得るシリコン製造用反応炉において、反応炉部とその下方にあるシリコン貯留部からなり反応炉に反応ガスの入り口と反応で生成した塩化亜鉛ガスの出口を有し、更に反応炉内に反応により生成した固体ないし液体シリコンを捕集する加熱機構を有する耐熱導電性のトラップを有し、反応中或いは反応停止後に該トラップをシリコンの溶融温度以上に加熱して生成したシリコンを液状とし、シリコン貯留部に送るようにしたことを特徴とするシリコン製造装置を用い、温度を1000℃から1400℃で気相反応を行わせしめ、生成シリコンのみを固相あるいは溶融相として分離し、反応後に液層として集め塊状あるいは直接単結晶成長に送るようにすることに依った。

【選択図】 図1

認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2003-117612
受付番号	10300510097
書類名	特許願
担当官	笹川 友子 9482
作成日	平成15年 5月 9日

<認定情報・付加情報>

【特許出願人】	申請人
【識別番号】	399027783
【住所又は居所】	東京都町田市森野4丁目15番地14号
【氏名又は名称】	島宗 孝之
【特許出願人】	申請人
【識別番号】	596028365
【住所又は居所】	神奈川県茅ヶ崎市共恵2-6-23
【氏名又は名称】	吉川 公

次頁無

特願 2003-117612

出願人履歴情報

識別番号

[399027783]

1. 変更年月日

1999年 5月 6日

[変更理由]

新規登録

住 所

東京都町田市本町田3006番地30

氏 名

島宗 孝之

2. 変更年月日

2002年 6月10日

[変更理由]

住所変更

住 所

東京都町田市森野4丁目15番地14号

氏 名

島宗 孝之

特願 2 0 0 3 - 1 1 7 6 1 2

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[5 9 6 0 2 8 3 6 5]

1. 変更年月日

1 9 9 6 年 1 月 2 6 日

[変更理由]

新規登録

住 所

神奈川県茅ヶ崎市共恵 2 - 6 - 2 3

氏 名

吉川 公